

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-182772
(43)Date of publication of application : 30.06.2000

(51)Int.Cl.

H05B 33/14
C09K 11/06

(21)Application number : 11-348994

(71)Applicant : EASTMAN KODAK CO

(22)Date of filing : 08.12.1999

(72)Inventor : CHEN CHIN HSIN
TANG CHING WAN
SHI JIANMIN
KLUBEK KEVIN P

(30)Priority

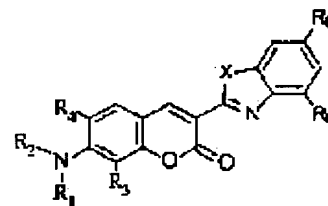
Priority number : 98 216238 Priority date : 18.12.1998 Priority country : US

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a highly stable element showing required green El light emission by including an anode, a cathode and a porphyrin compounds in an organic light emitting layer.

SOLUTION: A light emitting layer in an organic electroluminescent element includes an anode, a cathode, and a compound shown by the formula. In the formula, X represents S or O, R1, R2 independently represent an 1-20C alkyl group, an aryl group, or a carbocyclic group, R3, R4 independently represent a 1-10C alkyl group or a branched/unbranched five/six-membered ring substituent bonded to R1, R2, and R5, R6 independently represent a branched/unbranched 1-20C alkyl group. A hole injection layer for an organic EL element is formed in the layer including a porphyrin compound, for example. As useful porphyrin compounds, non-metalcontaining phthalocyanine and metal-containing phthalocyanine are available.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-182772

(P 2 0 0 0 - 1 8 2 7 7 2 A)

(43) 公開日 平成12年6月30日(2000.6.30)

(51) Int. Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード (参考)
H05B 33/14		H05B 33/14	B
C09K 11/06	655	C09K 11/06	655

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全15頁)

(21) 出願番号	特願平11-348994	(71) 出願人	590000846 イーストマン コダック カンパニー アメリカ合衆国, ニューヨーク14650, ロ チェスター, ステイト ストリート343
(22) 出願日	平成11年12月8日(1999.12.8)	(72) 発明者	チン シン チェン アメリカ合衆国, ニューヨーク 14506, メンドン, シャトー プレイス 6
(31) 優先権主張番号	09/216238	(72) 発明者	チン ワン タン アメリカ合衆国, ニューヨーク 14625, ロチェスター, パーク レーン 176
(32) 優先日	平成10年12月18日(1998.12.18)	(74) 代理人	100077517 弁理士 石田 敬 (外4名)
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

最終頁に続く

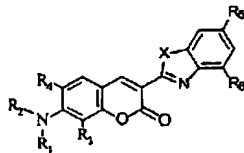
(54) 【発明の名称】 有機系エレクトロルミネセンス素子

(57) 【要約】

【課題】 熱安定性の高い改良型の緑色発光性有機系 E L 素子を提供する。

【解決手段】 アノードと、カソードと、下式の化合物を含有する少なくとも一つの有機発光層とを含んで成る有機系エレクトロルミネセンス素子。

【化1】



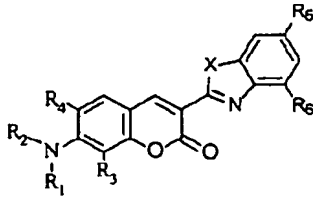
(上式中、XはS又はOを表し、R₁及びR₂は、各々独立に、炭素原子数1～20のアルキル基、アリール基又は炭素環式系を表し、R₃及びR₆は、各々独立に、炭素原子数1～10のアルキル基又はそれぞれR₁、R₂と結合している分岐したもしくは分岐していない5員もしくは6員の置換基環を表し、そしてR₆及びR₆は、各々独立に、分岐した又は分岐していない炭素原子数1～20のアルキル基を表す。)

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 アノードと、カソードと、下式の化合物を含有する少なくとも一つの有機発光層とを含んで成る有機系エレクトロルミネセンス素子。

【化1】



(上式中、

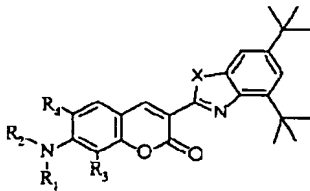
XはS又はOを表し、

R₁、及びR₂は、各々独立に、炭素原子数1～20のアルキル基、アリール基又は炭素環式系を表し、

R₃、及びR₄は、各々独立に、炭素原子数1～10のアルキル基又はそれぞれR₁、R₂と結合している分岐したもしくは分岐していない5員もしくは6員の置換基環を表し、そしてR₅、及びR₆は、各々独立に、分岐した又は分岐していない炭素原子数1～20のアルキル基を表す。)

【請求項2】 アノードと、カソードと、下式の化合物を含有する少なくとも一つの有機発光層とを含んで成る有機系エレクトロルミネセンス素子。

【化2】



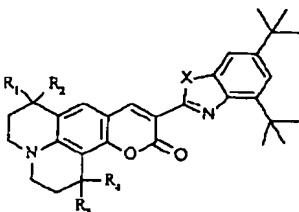
(上式中、

XはS又はOを表し、

R₁、及びR₂は、各々独立に、炭素原子数1～20のアルキル基、アリール基又は炭素環式系を表し、そしてR₃、及びR₄は、各々独立に、炭素原子数1～10のアルキル基又はそれぞれR₁、R₂と結合している分岐したもしくは分岐していない5員もしくは6員の置換基環を表す。)

【請求項3】 アノードと、カソードと、下式の化合物を含有する少なくとも一つの有機発光層とを含んで成る有機系エレクトロルミネセンス素子。

【化3】



(上式中、

2

R₁、R₂、R₃、及びR₄は、各々独立に、炭素原子数1～10のアルキル基又はアリール基を表し、そしてXはO又はSを表す。)

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は有機系エレクトロルミネセンス (EL) 素子に関する。より詳細には、本発明は非常に効率の高い緑色EL素子に関する。

【0002】

- 10 【従来の技術】 有機系EL素子は、高効率であることが知られており、しかも広範囲の発色が可能である。フラットパネル型ディスプレイのような用途が企図されている。初期の有機系EL素子の代表例が、Gurneeらの米国特許第3, 172, 862号 (1965年3月9日発行)、Gurneeの米国特許第3, 173, 050号 (1965年3月9日発行)、Dresnerの「Double Injection Electroluminescence in Anthracene」(RCA Review, Vol. 30, p. 322-334, 1969)、及びDresnerの米国特許第3, 710, 167号 (1973年1月9日発行) に記載されている。典型的な有機系発光材料は、共役系有機ホスト物質と縮合ベンゼン環を有する共役系有機活性化剤とで形成されたものである。有機ホスト物質の例として、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、ピレン、ベンゾピレン、クリセン、ピセン、カルバゾール、フルオレン、ピフェニル、テルフェニル、クアテルフェニル、トリフェニレンオキシド、ジハロピフェニル、トランスースチルベン及び1, 4-ジフェニルブタジエンが提案されている。活性化剤の例としてはアントラセン、テトラセン及びペンタセンが挙げられている。
- 30 【0003】 最近の当該技術分野における有機系EL素子構造についての発見により、極めて薄い複数の層 (全体厚として<1.0 μm) からなる有機系EL媒体でアノードとカソードを分離した素子がもたらされた。本明細書中、「有機系EL媒体」とはアノード電極とカソード電極との間の有機組成物をさすものとする。基本的な二層型EL素子構造では、一方の有機層が正孔を注入し且つ輸送するように具体的に選ばれ、そして他方の有機層が電子を注入し且つ輸送するように具体的に選ばれる。これら二つの層の間の界面が、注入された正孔-電子対の再結合及び生じるエレクトロルミネセンスのための効率部位を提供する。有機系EL媒体が極めて薄いため、抵抗が下がり、バイアス電圧レベルを一定とした場合の電流密度の向上が可能となる。発光は有機系EL媒体中の電流密度に直接関連するため、薄層は、電荷の注入及び輸送効率の向上と相まって、電界効果型トランジスタのような集積回路ドライバと適合する範囲の低い印

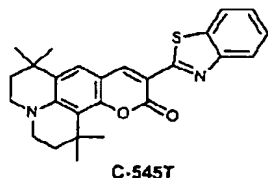
50

加電圧による許容できる発光レベル（例、周囲光下で視認できる輝度レベル）の実現を可能にした。

【0004】有機系EL素子のさらなる改良、例えば、色、安定性、効率及び製造法が、米国特許第4,356,429号、同第4,539,507号、同第4,720,432号、同第4,885,211号、同第5,151,629号、同第5,150,006号、同第5,141,671号、同第5,073,446号、同第5,061,569号、同第5,059,862号、同第5,059,861号、同第5,047,687号、同第4,950,950号、同第4,769,292号、同第5,104,740号、同第5,227,252号、同第5,256,945号、同第5,069,975号、同第5,122,711号、同第5,366,811号、同第5,126,214号、同第5,142,343号、同第5,389,444号及び同第5,458,977号に記載されている。

【0005】フルカラーEL表示パネルを製造するためには、適切な色度と十分な発光効率を有する高効率の赤、緑及び青（RGB）の各EL材料を入手する必要がある。このような目的を達成するのに便利な手段としてゲスト-ホストドープ系が挙げられる。その主な理由は、輸送特性及び発光特性を最適化したホスト単体を、所望の色相のELをもたらし各種ゲストドープメントと一緒に使用できるということである。

【0006】トリス-（8-ヒドロキシキノリナト）ア



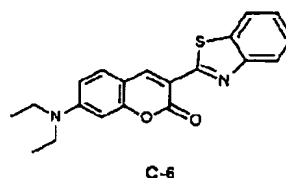
【0008】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、通常これらのクマリン誘導体はガラス転移温度（ T_g ）が比較的低く、このことが素子の熱安定性に影響を及ぼす。クマリン-6はDSCで観測できるような T_g を示さない。これは結晶化度が高いため、このことが最終的には素子の発光層の薄膜形態に影響を及ぼす。さらに、EL用途の場合、素子のEL効率を高めて電力消費量を節約するためにドープメントの構造を改変する必要がある。素子の構造及び駆動条件が一定である場合にcd/Aで表すEL効率が高ければ高いほど、所望の1931 CIE x, y 座標の組合せを示す所望の緑色発光を生ぜしめるに必要な電力は小さくなる。したがって、発光色に大きな影響を及ぼすことなくEL素子の熱安定性を高めるために、緑色クマリン系ドープメントの T_g を上昇させる特殊な置換基が必要である。また、発光色のCIE x, y 座標に大きな影響を及ぼすことなくクマリン/A1q（ゲスト/ホスト）発光体系の一定の緑色発光性EL素子の

ルミニウム（A1q）からドープメント分子への分光シフトを起こさせるゲスト-ホストエネルギー伝達の原理に基づくドープ型EL系が、Tangらの譲受人共通の米国特許第4,769,292号に記載されている。A1qは、その530nmにおける発光が赤色分光領域におけるゲストEL発光を十分に増感するため、赤色EL発光体にとって好適なホストである。当該従来技術において緑色発光を提供するように選ばれた好ましいドープメントは、一般にクマリン-6（又はC-6）として知られている3-（2'-ベンゾチアゾリル）-7-ジエチルアミノクマリン及びクマリン-545T（又はC-545T）としての方が知られている10-（2-ベンゾチアゾリル）-1,1,7,7-テトラメチル-2,3,6,7-テトラヒドロ-1H,5H,11H-[1]ベンゾピラノ〔6,7,8-i,j〕キノリジン-11-オンであった。これらの緑色蛍光色素をエレクトロルミネセンス素子に使用することは、米国特許第4,769,292号及び特開平6-9952号公報に記載されている。一般に、これらの分子は希薄溶液において高いフォトルミネセンス（PL）量子収率を示し、そしてその緑色エレクトロルミネセンス効率は、A1qをホスト発光体として用いたEL素子において適当な濃度レベルでドープされた場合に高くなる。

【0007】

【化4】



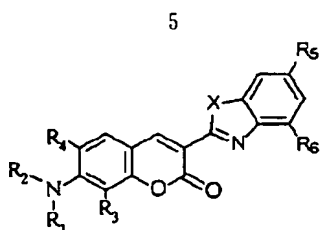
EL効率を高める特殊な置換基も必要である。したがって、EL用途に有用なクマリン系の高 T_g 、蛍光性化合物であって、EL効率を高め且つそれぞれC-6又はC-545Tと同様の色である緑色の所望のEL発光を示すものを提供することが望まれる。本発明の目的は、熱安定性の高い改良型の緑色発光性有機系EL素子を提供することにある。

【0009】

【課題を解決するための手段】上記の目的は、アノードと、カソードと、下式の化合物を含有する少なくとも一つの有機発光層とを含んで成る有機系エレクトロルミネセンス素子によって達成される。

【0010】

【化5】



【0011】上式中、XはS又はOを表し、R₁及びR₂は、各々独立に、炭素原子数1～20のアルキル基、アリール基又は炭素環式系を表し、R₃及びR₄は、各々独立に、炭素原子数1～10のアルキル基又はそれぞれR₁、R₂と結合している分岐したもしくは分岐していない5員もしくは6員の置換基環を表し、そしてR₅及びR₆は、各々独立に、分岐した又は分岐していない炭素原子数1～20のアルキル基を表す。

【0012】本発明の特徴は、これらの化合物が、それぞれC-6又はC-545Tが示すT₂よりも高いT₂を示すことにある。本発明の別の特徴として、当該化合物を一定のEL素子に適用した場合に、同様のCIE x, y色度を有する同一の緑色EL発光が得られることがある。本発明のさらに別の特徴は、当該化合物が、ベンゾチアゾール環又はベンゾキサゾール環にt-ブチル基が結合されていない化合物と比較して、意外にも高いエレクトロルミネセンス効率を示すことである。その上、当該蛍光性化合物は、濃度消光(concentration quenching)に対する抵抗性が高く、しかも嵩高いt-ブチル置換が母体化合物の色度特性を顕著に変化させることはない。

【0013】

【発明の実施の形態】図1に本発明によるEL素子100を概略的に示す。支持体を層102で示すが、これは電気絶縁性であって光透過性の材料、例えばガラス又はプラスチックである。アノード104とカソード106は、図示したように累置された二つの有機薄膜層からなる有機系EL媒体108によって分離されている。アノードの上に位置する層110は有機系EL媒体の正孔輸送層を形成する。この正孔輸送層110の上には、有機系EL媒体の電子輸送層を形成する層112が位置する。アノード104とカソード106は、それぞれ導線116、118によって外部のAC又はDC電源114に接続されている。電源114はパルス式、間欠式又は連続式であることができる。

【0014】動作中、アノード104がカソード106よりも高い電位にある時は、EL素子100を、フォワードバイアスされるダイオードと見ることができる。この条件下では、正孔120（正帯電キャリア）がアノード104から正孔輸送層110に注入され、そして電子が電子輸送層112に注入される。注入された正孔と電子は、矢印120及び122で示したように、それぞれ逆帯電した電極に向けて移動する。その結果、正孔-電子の再結合が起り、エネルギーの一部が光として放出

6

されてエレクトロルミネセンスが発生する。

【0015】正孔と電子が再結合する領域は再結合帯域として知られている。二層型素子の構造は、エレクトロルミネセンスが生じる可能性が最も高い正孔輸送層110と電子輸送層112との界面の近傍に当該再結合が閉じ込められるように具体的に設計される。この再結合を閉じ込めるスキームについては、Tang及びVan Slyke[Applied Physics Letters, Vol. 51, p. 913, 1987]に記載されており、適当な仕事関数のキャリア注入電極と適当なキャリア移動度の輸送材料とを選ぶことにより行われる。当該有機層間の界面から離れると、特に注入電極において又はその付近では、一般に導電性表面による放射消光効果のため放射は非常に少なくなる。

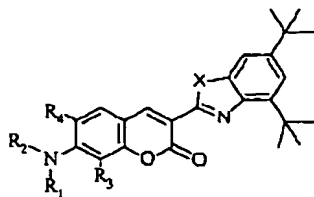
【0016】図2に示した有機系EL素子200は、本発明の別の好適な具体的態様を例示するものである。絶縁性且つ透明な支持体は層202である。アノード204とカソード206は、図示したように累置された三つの有機薄膜層からなる有機系EL媒体208によって分離されている。アノード204に隣接した層210は正孔輸送層である。カソード206に隣接した層214は電子輸送層である。正孔輸送層210と電子輸送層214との間に位置する層212は発光層である。この発光層212は、正孔と電子が再結合する再結合層としても働く。

【0017】素子100と素子200は構成が似ているが、素子200には、主として正孔-電子再結合、すなわちエレクトロルミネセンスのための部位として機能する発光層が追加導入されている。このため、個々の有機層の機能は区別され、したがってそれぞれ個別に最適化することができる。すなわち、発光層又は再結合層を、所望のEL色及び高い発光効率が得られるように選ぶことができる。同様に、電子輸送層214及び正孔輸送層210を、主としてキャリア輸送特性について最適化することができる。

【0018】図3に示した有機系EL素子300は、本発明のさらに別の好ましい具体的態様を示すものである。絶縁性且つ透明な支持体は層302である。アノード304とカソード306は、図示したように累置された五つの有機薄膜層からなるEL媒体308によって分離されている。アノード304の上には、順に、正孔注入層310、正孔輸送層312、発光層314、電子輸送層316及び電子注入層318が配置されている。素子300の構造は素子200と似ているが、アノード304及びカソード306の注入効率を改良するためにそれぞれ正孔注入層310及び電子注入層318が追加されている。EL素子は、その性能を不当に損なうことなく有機系EL媒体に正孔注入層又は電子注入層（それぞれ310及び318）のいずれかを有するものとして構築できることが理解される。有効な特定の化合物の一種を以下に示す。

【0019】

【化6】

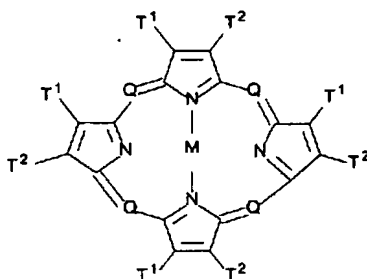
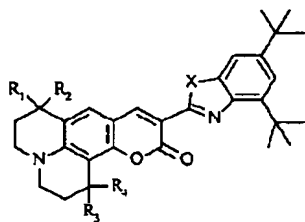


【0020】上式中、XはS又はOを表し、R₁及びR₂は、各々独立に、炭素原子数1～20のアルキル基、アリール基又は炭素環式系を表し、そしてR₃及びR₄は、各々独立に、炭素原子数1～10のアルキル基又はそれぞれR₁、R₂と結合している分岐したもしくは分岐していない5員もしくは6員の置換基環を表す。

【0021】より具体的には、R₁、R₂、R₃及びR₄は、メチル、エチル、プロピル、n-ブチル、i-ブチル又はアリールであることができる。また、R₃及びR₄をそれぞれR₁及びR₂と共に、R₁、R₂=R₃、R₄が〔CH₂CH₂〕、〔CH₂CH₂CH₂〕、〔CH₂CH₂C(CH₃)₂〕となるように配置することもできる。EL素子においては下記構造式の化合物が特に有効であることがわかった。

【0022】

【化7】



(II)

【0026】上式中、Qは-N=又は-C(R)=を表し、Mは金属、金属酸化物又は金属ハロゲン化物を表し、Rは水素、アルキル、アラルキル、アリール又はアルカリールを表し、そしてT¹及びT²は、水素を表すか、又は共同してアルキルもしくはハロゲンのような置換基を含んでもよい不飽和六員環を完成する。好適な六員環は炭素、硫黄及び窒素の各環原子から構成されたものである。好適なアルキル部分は約1～6個の炭素原子を含有し、またフェニルが好適なアリール部分を構成す

【0023】上式中、R₁、R₂、R₃及びR₄は、各々独立に、炭素原子数1～10のアルキル基又はアリール基を表し、そしてXはO又はSを表す。EL素子100、200及び300の支持体層は電気絶縁性且つ光透過性である。光透過性は、EL発光を支持体層を通して観察するために望まれる。EL発光を上部電極を通して観察するような用途の場合には、支持体の透過性は重要ではなく、したがって適当な任意の支持体、例えば不透明半導体やセラミックウェハを使用することができる。もちろん、このような素子構成の場合には光透過性の上部電極が必要となる。

【0024】以下、有機系EL媒体の組成について、特に素子構造300を参照しながら説明する。ポルフィリン系化合物を含有する層が有機系EL素子の正孔注入層を形成する。ポルフィリン系化合物とは、天然物であるか合成物であるかを問わず、ポルフィン自体をはじめとする、ポルフィリン構造体から誘導された又はこれを含むすべての化合物をさす。Adlerの米国特許第3,935,031号又はTangの米国特許第4,356,429号（これらの開示事項を本明細書の一部とする）に開示されているいずれのポルフィリン系化合物でも使用することができる。好適なポルフィリン系化合物は下記構造式(II)で表されるものである。

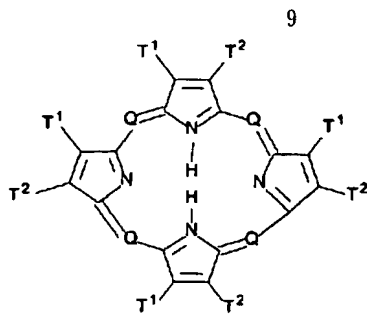
【0025】

【化8】

る。別の代わりとなる好適な態様として、下記構造式(II)に示すように、上記構造式(II)における金属原子を二つの水素に置き換えたポルフィリン系化合物がある。

【0027】

【化9】



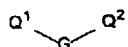
(III)

【0028】有用なポルフィリン系化合物のうち非常に好適な例として、金属不含フタロシアニン類及び含金属フタロシアニン類が挙げられる。ポルフィリン系化合物は一般に、またフタロシアニン類は特に、任意の金属を含有することができるが、当該金属は2以上の正の原子価を示すことが好ましい。好適な金属の例として、コバルト、マグネシウム、亜鉛、パラジウム、ニッケル、そしてとりわけ銅、鉛及び白金が挙げられる。有用なポルフィリン系化合物の具体例として、ポルフィン、1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルフィン銅(II)、1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルフィン亜鉛(II)、銅フタロシアニン及びクロムフタロシアニンフルオリドが挙げられる。

【0029】有機系EL素子の正孔輸送層は少なくとも一種の正孔輸送性芳香族第三アミンを含有する。当該アミンは、少なくとも一つが芳香族環の員である複数の炭素原子にのみ結合されている三価の窒素原子を1個以上含有する化合物であると理解される。芳香族第三アミンは、一形態として、アリールアミン、例えばモノアリールアミン、ジアリールアミン、トリアリールアミン又は高分子量アリールアミンであることができる。単量体のトリアリールアミンはKlupfelらの米国特許第3, 180, 730号に記載されている。ビニルもしくはビニル基で置換された及び／又は少なくとも一種の活性水素含有基を含有する他の好適なトリアリールアミンが、Branlleyらの米国特許第3, 567, 450号及び同第3, 658, 520号に記載されている。別の部類の芳香族第三アミンは2以上の芳香族第三アミン部分を含むものである。このような化合物は下記構造式(IV)で表されるものを含む。

【0030】

【化10】



(IV)

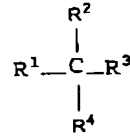
【0031】上式中、Q¹及びQ²は、各々独立に、芳香族第三アミン部分を表し、そしてGは結合基、例えば、アリーレン基、シクロアルキレン基もしくはアルキ

10

レン基又は炭素-炭素結合を表す。上記構造式(IV)を満たし且つ二つのトリアリールアミン部分を含有する好適な部類のトリアリールアミンは、下記構造式(V)を満たすものである。

【0032】

【化11】



(V)

【0033】上式中、R¹及びR²は、各々独立に、水素原子、アリール基もしくはアルキル基を表すか、又はR¹とR²が共同してシクロアルキル基を完成する原子団を表し、そしてR³及びR⁴は、各々独立に、アリール基を表すが、このアリール基は下記構造式(VI)に示すジアリール置換アミノ基で置換されている。

【0034】

【化12】

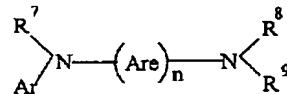


(VI)

【0035】上式中、R⁵及びR⁶は、各々独立に選ばれたアリール基を表す。別の好適な部類の芳香族第三アミンはテトラアリールジアミンである。好適なテトラアリールジアミンは、下記構造式(VII)で示すように、アリーレン基を介して結合された二つのジアリールアミノ基を含む。

【0036】

【化13】



(VII)

【0037】上式中、Areはアリーレン基を表し、nは1~4の整数を表し、そしてAr、R⁷、R⁸及びR⁹は、各々独立に選ばれたアリール基を表す。

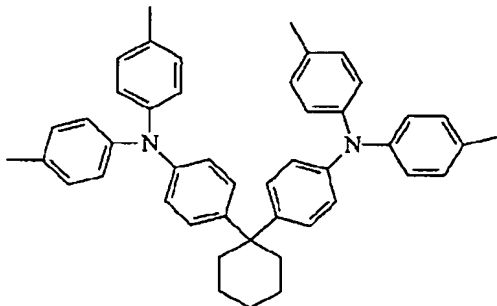
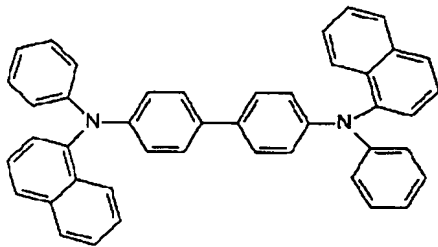
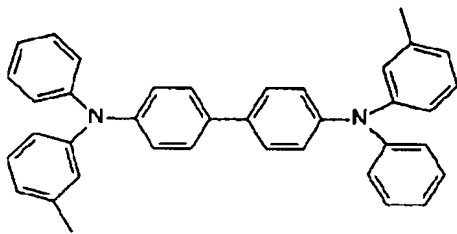
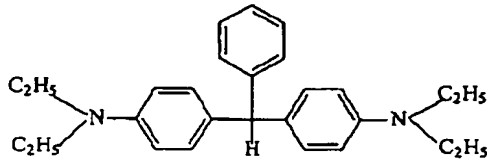
【0038】上記構造式(IV)、(V)及び(VII)の各種アルキル、アルキレン、アリール及びアリーレン部分は、それぞれ自身が置換されていてもよい。典型的な置換基にはアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、そしてフッ化物、塩化物及び臭化物のようなハロゲンが含まれる。各種アルキル及びアルキレン部分は、典型的には約1~6個の炭素原子を含有する。シクロアルキル部分は3~約10個の炭素原子を含有することができるが、典型的には、シクロペンチル、シク

11

ロヘキシル及びシクロヘプチルの各環構造体のように5個、6個又は7個の環炭素原子を含有する。アリール部分及びアリーレン部分はそれぞれフェニル部分及びフェニレン部分であることが好ましい。有用な正孔輸送性化合物の具体例は以下の通りである。

【0039】

【化14】



12

【0040】有機系EL媒体の発光層は発光性又は蛍光性の材料を含み、その領域で電子-正孔対が再結合する結果、エレクトロルミネセンスが発生する。最も単純な構成は、発光層が、蛍光効率の高い高純度材料を単一成分として含むものである。周知の材料に、優れた緑色エレクトロルミネセンスを発するトリス(8-キノリナト)アルミニウム(A1q)がある。好適な態様の発光層は、ホスト材料に一種以上の蛍光色素成分をドーブしたものである多成分系材料を有する。この方法を用いて高効率EL素子を構築することができる。同時に、共通のホスト材料において発光波長の異なる蛍光色素を使用することによってEL素子の色を調節することができる。このドーパントの計画については、Tangら[J. Applied Physics, Vol. 65, pp. 3610-3616, 1989; 米国特許第4, 769, 292号]が、ホスト材料としてA1qを使用したEL素子について相当詳しく説明している。

20

【0041】ホスト材料中に存在させる場合に発光の色相を調節することができるドーパントとして蛍光色素を選択する際の重要な関係は、当該分子の最高被占軌道と最低空軌道との間のエネルギー差として定義されるそれぞれのバンドギャップポテンシャルを比較することである。ホスト材料からドーパント分子への効率的なエネルギー伝達に必要な条件は、当該ドーパントのバンドギャップがホスト材料のそれよりも小さいことである。A1qのような緑色ホスト材料を使用する利点は、そのバンドギャップが、C-6やC-545T及び本発明による改良された緑色蛍光性化合物のような緑色発光する蛍光色素へのエネルギー伝達を行わせるに十分な大きさを有することである。

30

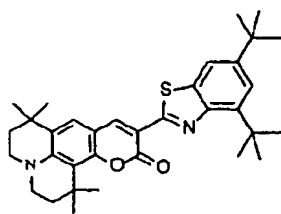
【0042】本発明を実施する場合、ホスト材料がEL発光層を形成し、そこでA1qを含む電子-正孔再結合に応じて発光が起こる。ホストA1qのドーパントには、上記構造式に示した緑色蛍光色素が含まれる。この緑色ドーパントを図1の層112、図2の層212又は図3の層314に使用すると、明澄な色相の高効率の緑色エレクトロルミネセンスを容易に得ることができる。下記の分子構造体は、本発明の要件を満たす好適な緑色蛍光性化合物(色素)の具体例を構成する。

40

【0043】

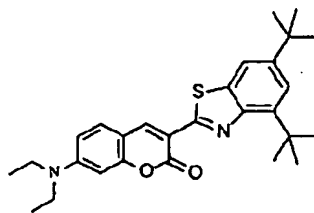
【化15】

13

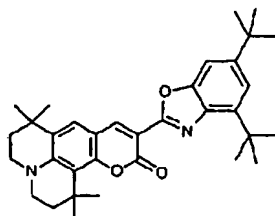


C-545TB

14



C-6DB

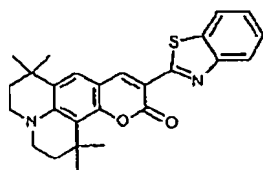


C-525TB

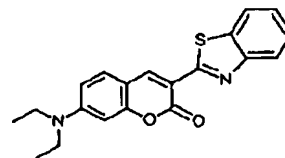
【0044】比較のため、従来公知の緑色ドーパントの構造を例示する。

【0045】

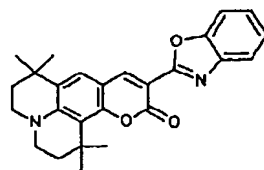
【化16】



C-545T



C-6

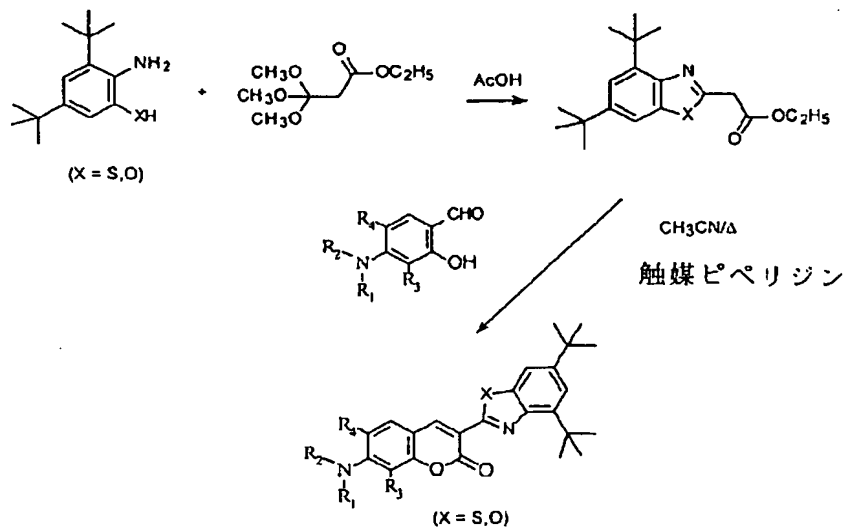


C-525T

【0046】スキーム1は本発明が開示する新規蛍光色素の合成経路を示すものである。

【0047】スキーム1：新規緑色ドーパントの合成

【化17】



【0048】これらの新規材料をAlqにおいて緑色ド 50 ーパントとして使用した場合の熱的特性及びEL性能

を、それぞれ表1及び表2において比較した。

【0049】表1：DSCデータ及びTGAデータの比較

【表1】

色素	T _g ℃	T _m ℃	T _{dec} ℃
C-6	-1	209	317
C-6DB	107	286	348
C-545T	100	230	318
C-545TB	142	276	327
C-525T	95	274	311
C-525TB	118	252	318

色素	Alq中モル%	ELセル	V ²	cd/m ²	cd/A	lm/W	CIE _x	CIE _y
C-6	0.8	A ¹	7.9	1447	7.23	2.87	0.286	0.625
C-6DB	0.8	A	8.2	1683	8.42	3.24	0.286	0.623
C-6	0.7	B ²	9.3	1615	8.07	2.72	0.275	0.633
C-6DB	0.7	B	11.8	2150	10.75	2.86	0.281	0.635
C-545T	1	A	6.8	1748	8.74	4.05	0.325	0.627
C-545TB	1	A	6.9	2014	10.07	4.62	0.322	0.629
C-545T	1	B	11.1	2364	10.45	3.34	0.295	0.648
C-545TB	1	B	11.6	2585	12.93	3.50	0.302	0.644

1：ITO/NPB/ドーパント(x%)/Alq/Alq/Mg:Ag

2：ITO/CuPc/ドーパント(x%)/Alq/Alq/Mg:Ag

3：駆動電流=20 mA/cm²

【0052】さらに表2から明らかなことは、ドーパントC-6やC-545Tの代わりに新規緑色ドーパントを使用すると、EL効率が一段と向上することである。この意外な向上は、正孔注入層CuPcの有無とは無関係に、A、Bいずれのセル構成においても証明された。その上、高T_gドーパントのC-6DB及びC-545TBによる緑色発光と、それぞれ対応するC-6及びC-545Tによる緑色発光とに顕著な差はない。換言すれば、ベンゾチアゾール環又はベンゾキサゾール環を二つのt-ブチル基で置換しても、発光色には影響がない。当該置換は、色素のT_gを高くし且つEL効率を向上するという利点を与えるのみである。

【0053】本発明の有機系EL素子の電子輸送層を形成するのに使用される好適な材料は、オキシシ（一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリンとも称される）自身のキレートをはじめとする金属キレート化オキシノイド系化合物である。当該化合物は、高い性能レベルを示すと同時に、薄膜形態で容易に製造される。企図されるオキシノイド系化合物の例として、下記構造式を満たすものが挙げられる。

【0054】

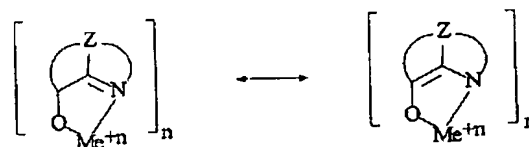
【化18】

1：結晶化度が高いため、DSC分析で観測できるT_gは検出されなかった。

【0050】表1より明らかなことは、新規色素のいずれもが、それぞれ対応するC-6、C-545T及びC-525Tよりも高いガラス転移温度（T_g）、融解温度（T_m）及び分解温度（T_{dec}）を示していることである。T_{dec}のしきい値が高いことも、発光材料の蒸発時の熱分解が防止されるという点で有利である。

【0051】表2：EL性能の比較

10 【表2】



30 【0055】上式中、Meは金属を表し、nは1～3の整数を表し、そしてZは、各々独立に、二以上の縮合芳香族環を有する核を完成する原子団を表す。上記より、当該金属が一価、二価又は三価の金属であることができるということは明白である。当該金属は、例えば、リチウム、ナトリウムもしくはカリウムのようなアルカリ金属、マグネシウムもしくはカルシウムのようなアルカリ土類金属、又はホウ素もしくはアルミニウムのような土類金属であることができる。一般に、有用なキレート化金属であることが知られている任意の一価、二価又は三価の金属を使用することができる。

40 【0056】Zは、少なくとも一つがアゾール環又はアジン環である二以上の縮合芳香族環を含有する複素環式核を完成する。必要があれば、二つの必須環に、脂肪族環及び芳香族環の両方を含む追加の環を縮合させてもよい。機能の改良を伴わずに分子がさらに嵩高くなることのないように、環原子の数を18以下に維持しておくことが好ましい。有用なキレート化オキシノイド系化合物の例として、アルミニウムトリオキシシ（別名トリス（8-キノリノール）アルミニウム）、マグネシウムビスオキシシ（別名ビス（8-キノリノール）マグネシウム）

ム)、インジウムトリスオキシシ〔別名トリス(8-キノリノール)インジウム〕及びリチウムオキシシ〔別名8-キノリノールリチウム〕が挙げられる。

【0057】有機系EL媒体の多層にとって好適な材料は、それぞれ薄膜形成が可能である、すなわち、厚さ5000Å未満の連続層として製造することができる。有機系EL媒体を形成するための好適な方法は真空蒸着法である。この方法により極めて薄く欠陥のない連続層を形成することができる。具体的には、十分なEL素子性能を実現しつつ個々の層厚を約50Åという薄さで構築することができる。一般には、有機系EL媒体の全体厚を約1000Å以上にすることが好ましい。

【0058】本発明のEL素子の薄膜を形成するための他の方法として、EL材料を含む溶液の回転塗布法が挙げられる。多層EL素子の製造には、回転塗布法と真空蒸着法を組み合わせることも有用である。

【0059】有機系EL素子のアノード及びカソードは、それぞれ常用の便利ないずれの形態でもとることができる。有機系EL素子の光をアノードを透過させたい場合には、透明又は実質的に透明なガラス板又はプラスチックフィルムのような光透過性支持体層の上に薄い導電性層をコーティングすることによって便利に達成することができる。本発明の有機系EL素子は、一態様として、先に引用したGurneeらの米国特許第3,172,862号、Gurneeの米国特許第3,173,050号、Dresnerの「Double Injection Electroluminescence in Anthracene」(RCARreview, Vol. 30, pp. 322-334, 1969)、及びDresnerの米国特許第3,710,167号に記載されているように、酸化錫又はインジウム錫酸化物をガラス板の上にコーティングして形成された光透過性アノードをはじめとする沿革的慣例に従うことができる。

【0060】本発明の有機系EL素子は、高仕事関数又は低仕事関数の金属をはじめとし、これまで当該目的に有用であるとされている任意の金属で構築されたカソードを使用することができる。低仕事関数金属とその他の金属の少なくとも一種とを組み合わせるカソードを形成することによって、製造、性能及び安定性に関して意外な利点を実現されている。その詳細については、Tang及びVan Slykeの米国特許第4,885,211号(その開示事項を本明細書の一部とする)を参照されたい。

【0061】

【実施例】スキーム1に略述した合成経路により、以下の具体例で本発明とその利点をさらに説明する。

例1: C-545TBの合成

1. 5gのp-トルエンスルホン酸を含む1.2Lのメタノールに40gの3,5-ジ(t-ブチル)-2-メルカプトアニリン〔文献に従い3,5-ジ(t-ブチル)安息香酸から合成したもの〕と75mLの3-(ト

リメトキシ)プロピオン酸エチルとを含む混合物を室温で18時間攪拌した。メタノールの過剰分をロータリーエバポレーターで除去した。析出した固形分を濾過し、そして冷メタノールで洗浄した。その粗生成物をシリカゲル系フラッシュクロマトグラフィーにかけてヘプタンで溶離して精製したところ、20gの2-[5,7-ジ(t-ブチル)ベンゾチアゾリル]酢酸エチルが得られた。これを、4mLのピペリジンを含む200mLのアセトニトリルにおいて16gの1,1,7,7-テトラメチル-8-ヒドロキシ-9-ホルミルジュロリジンと共に18時間還流させた。反応混合物を冷却し、析出した明るいオレンジ色の固形分を濾過したところ、13gの所望の色素C-545TB(融点=275~276℃; $T_g = 140^\circ\text{C}$)が得られた。

【0062】例2: C-6DBの合成

0. 4mLのピペリジンを含む50mLのアセトニトリルに4gの2-[5,7-ジ(t-ブチル)ベンゾチアゾリル]酢酸エチルと2.32gのN,N-ジ(エチル)サリチルアルデヒドとを含む混合物を20時間還流した。その混合物を冷却し、析出した明るい黄色の固形分を濾過し、そして少量の冷アセトニトリルで洗浄したところ、1.86gの高純度C-6DB[融点=285.4~287℃; $T_g = 107^\circ\text{C}$; ES^+ マススペクトル: $m/e = 463 (M^+ - 1)$]が得られた。

【0063】例3: C-525TBの合成

0. 16gのp-トルエンスルホン酸を含む20mLのエタノールに2.6gの3,5-ジ(t-ブチル)-2-アミノフェノールと5gの3-(トリメトキシ)プロピオン酸エチルとを含む混合物を18時間還流した。エタノールをロータリーエバポレーターで除去し、その残留物をエーテルに溶かし、重炭酸ナトリウム水溶液中で中性になるまで洗浄した。有機相を分離し、硫酸マグネシウムで乾燥させ、そしてロータリーエバポレーターにかけると褐色の油状物が得られ、これを減圧蒸留(152~154℃/0.5mm)によって精製したところ、2.1g(収率56%)の2-[5,7-ジ(t-ブチル)ベンゾキサゾリル]酢酸エチルが得られた。これを、塩基触媒として0.3mLのピペリジンを含む25mLのアセトニトリルにおいて1.81gの1,1,7,7-テトラメチル-8-ヒドロキシ-9-ホルミルジュロリジンと共に18時間還流させた。冷却時、反応混合物は明るい黄色の固形分を析出し、これを濾過して少量の冷アセトニトリルで洗浄したところ、1.92gの高純度色素C-525TB(融点=251.5℃; $T_g = 118^\circ\text{C}$)が得られた。

【0064】例4: C-525Tの合成

2. 05gの2-(ベンゾキサゾリル)酢酸エチルの混合物を、塩基触媒として0.3mLのピペリジンを含む25mLのアセトニトリルにおいて2.74gの1,1,7,7-テトラメチル-8-ヒドロキシ-9-ホル

ミルジュロリジンと共に 18 時間還流させた。冷却時、その混合物からアセトニトリルをロータリーエバポレータで除去した。その残留物にエーテルを加えたところ、明るいオレンジ色の固形分が析出した。これを濾過し、エーテルで洗浄し、そして 50 mL のトルエンから再結晶化したところ、1.35 g の高純度色素 C-525T (融点 = 274 ~ 275℃; T_g = 95℃) が得られた。

【0065】例 5 : C-545T の合成

12.28 g の 2-(ベンゾチアゾリル)酢酸エチルを、塩基触媒として 2 mL のピペリジンを含む 120 mL のアセトニトリルにおいて 15 g の 1, 1, 7, 7-テトラメチル-8-ヒドロキシ-9-ホルミルジュロリジンと共に 15 時間還流させた。冷却時、析出した明るいオレンジ色の固形分を濾過して少量のアセトニトリルで洗浄したところ、1.9 g (収率 79%) の高純度色素 C-545T (融点 = 229 ~ 230℃; T_g = 100℃) が得られた。

【0066】例 6 : EL 素子の製造及び性能

本発明の要件を満たす EL 素子を以下のように構築した。比較用として、本例は、EL 媒体に緑色蛍光性の C-6 (従来技術) をドーブした発光層が含まれる有機系 EL 素子を説明するものである。当該有機系 EL 媒体は三つの有機層、すなわち、正孔輸送層と、ドーブされた発光層と、電子輸送層とを有する。

(a) インジウム錫酸化物 (ITO) を被覆したガラス基板を、順に、市販の洗剤で超音波処理し、脱イオン水でリンスし、トルエン蒸気で脱脂処理し、そして酸素プラズマに晒した後、CF₄ プラズマ処理を施した。

(b) 処置後の ITO ガラス基板の上に、タンタルポートからの蒸発法により N, N'-ビス-(1-ナフチル)-N, N'-ジフェニルベンジジンの正孔輸送層 (600 Å) を付着させた。

(c) 次に、正孔輸送層の上に、0.8 (モル%) の緑色蛍光性ドーバント C-6 を混合した Alq の発光層 (375 Å) を同時付着させた。

(d) 次に、発光層の上に Alq の電子輸送層 (375 Å) を付着させた。

(e) Alq 層の上に、原子比 10 : 1 の Mg と Ag からなるカソード層 (2000 Å) を付着させた。

【0067】上記の順序で EL 素子の蒸着を完了した。その後、EL 素子を周囲環境から保護するためにドライグローブボックスの中で気密包装した。本 EL 素子は、20 mA/cm² の電源及び 7.9 ボルトのバイアス電圧で駆動した時に 1447 cd/m² の光出力を示した。放射輝度は 3.08 W/Sr/m² で、EL 効率は 2.87 lm/W で、そして収量は 7.23 cd/A であった。ピーク発光波長は 516 nm で、その半値幅は 60 nm であった。EL 色は緑色で、その 1931 CIE 色度座標は x=0.286, y=0.625 であった。この EL スペクト

ルは、当該緑色 EL 発光が、ドーブされた発光層から生じたことを示唆するものである。

【0068】例 7

本例は、新規な緑色蛍光性の C-6 DB をドーブした発光層が EL 媒体に含まれる有機系 EL 素子を製造する利点を説明するものである。当該有機系 EL 媒体は三つの有機層、すなわち、正孔輸送層と、ドーブされた発光層と、電子輸送層とを有する。

(a) インジウム錫酸化物 (ITO) を被覆したガラス基板を、順に、市販の洗剤で超音波処理し、脱イオン水でリンスし、トルエン蒸気で脱脂処理し、そして酸素プラズマに晒した後、CF₄ プラズマ処理を施した。

(b) 処置後の ITO ガラス基板の上に、タンタルポートからの蒸発法により N, N'-ビス-(1-ナフチル)-N, N'-ジフェニルベンジジンの正孔輸送層 (600 Å) を付着させた。

(c) 次に、正孔輸送層の上に、0.8 (モル%) の緑色蛍光性ドーバント C-6 DB を混合した Alq の発光層 (375 Å) を同時付着させた。

(d) 次に、発光層の上に Alq の電子輸送層 (375 Å) を付着させた。

(e) Alq 層の上に、原子比 10 : 1 の Mg と Ag からなるカソード層 (2000 Å) を付着させた。

【0069】上記の順序で EL 素子の蒸着を完了した。その後、EL 素子を周囲環境から保護するためにドライグローブボックスの中で気密包装した。本 EL 素子は、20 mA/cm² の電源及び 8.2 ボルトのバイアス電圧で駆動した時に 1683 cd/m² の光出力を示した。放射輝度は 3.59 W/Sr/m² で、EL 効率は 3.24 lm/W で、そして収量は 8.42 cd/A であった。ピーク発光波長は 512 nm で、その半値幅は 68 nm であった。EL 色は緑色で、その 1931 CIE 色度座標は x=0.286, y=0.623 であった。この EL スペクトルは、当該緑色 EL 発光が、ドーブされた発光層から生じたことを示唆するものである。

【0070】例 8

本例は、公知の緑色蛍光性の C-6 をドーブした発光層が EL 媒体に含まれる有機系 EL 素子を製造する利点を説明するものである。当該有機系 EL 媒体は四つの有機層、すなわち、正孔注入層と、正孔輸送層と、ドーブされた発光層と、電子輸送層とを有する。

(a) インジウム錫酸化物 (ITO) を被覆したガラス基板を、順に、市販の洗剤で超音波処理し、脱イオン水でリンスし、トルエン蒸気で脱脂処理し、そして紫外線及びオゾンに 2 ~ 3 分間晒した。

(b) ITO 被覆基板の上に、タンタルポートからの蒸発法により銅フタロシアニンの正孔注入層 (150 Å) を付着させた。

(c) 銅フタロシアニン層の上に、タンタルポートからの蒸発法により N, N'-ビス-(1-ナフチル)-

N, N'-ジフェニルベンジジンの正孔輸送層 (600 Å) を付着させた。

(d) 次に、正孔輸送層の上にドーブされた Alq 層 (375 Å) を付着させた。このドーブされた層は、0.7 モル%の緑色蛍光性 C-6 を含有し、Alq と同時付着することにより均一なドーブされた発光層を形成したものである。

(e) 次に、発光層の上に Alq の電子輸送層 (350 Å) を付着させた。

(f) Alq 層の上に、原子比 10:1 の Mg と Ag からなるカソード層 (2000 Å) を付着させた。

【0071】上記の順序で EL 素子の蒸着を完了した。その後、EL 素子を周囲環境から保護するためにドライグローブボックスの中で気密包装した。本 EL 素子は、20 mA/cm² の電源及び 9.3 ボルトのバイアス電圧で駆動した時に 1615 cd/m² の光出力を示した。EL 色は緑色で、その 1931 CIE 色度座標は x=0.275, y=0.633 であった。放射輝度は 3.39 W/Sr/m² で、EL 効率は 2.72 lm/W で、そして収量は 8.07 cd/A であった。EL スペクトルのピーク発光波長は 516 nm で、その半値幅は 60 nm であった。この EL スペクトルは、当該 EL 発光が、緑色蛍光色素をドーブした Alq 層から生じたことを示唆するものである。

【0072】例 9

本例は、新規な緑色蛍光性の C-6 DB をドーブした発光層が EL 媒体に含まれる有機系 EL 素子を製造する利点を説明するものである。当該有機系 EL 媒体は四つの有機層、すなわち、正孔注入層と、正孔輸送層と、ドーブされた発光層と、電子輸送層とを有する。

(a) インジウム錫酸化物 (ITO) を被覆したガラス基板を、順に、市販の洗剤で超音波処理し、脱イオン水でリンスし、トルエン蒸気で脱脂処理し、そして紫外線及びオゾンに 2~3 分間晒した。

(b) ITO 被覆基板の上に、タンタルポートからの蒸発法により銅フタロシアニンの正孔注入層 (150 Å) を付着させた。

(c) 銅フタロシアニン層の上に、タンタルポートからの蒸発法により N, N'-ビス-(1-ナフチル)-N, N'-ジフェニルベンジジンの正孔輸送層 (600 Å) を付着させた。

(d) 次に、正孔輸送層の上にドーブされた Alq 層 (375 Å) を付着させた。このドーブされた層は、0.7 モル%の緑色蛍光性 C-6 DB を含有し、Alq と同時付着することにより均一なドーブされた発光層を形成したものである。

(e) 次に、発光層の上に Alq の電子輸送層 (350 Å) を付着させた。

(f) Alq 層の上に、原子比 10:1 の Mg と Ag からなるカソード層 (2000 Å) を付着させた。

【0073】上記の順序で EL 素子の蒸着を完了した。その後、EL 素子を周囲環境から保護するためにドライグローブボックスの中で気密包装した。本 EL 素子は、20 mA/cm² の電源及び 11.8 ボルトのバイアス電圧で駆動した時に 2150 cd/m² の光出力を示した。EL 色は緑色で、その 1931 CIE 色度座標は x=0.281, y=0.635 であった。放射輝度は 4.47 W/Sr/m² で、EL 効率は 2.86 lm/W で、そして収量は 10.75 cd/A であった。EL スペクトルのピーク発光波長は 516 nm で、その半値幅は 64 nm であった。この EL スペクトルは、当該 EL 発光が、緑色蛍光色素をドーブした Alq 層から生じたことを示唆するものである。

【0074】例 10

本例は、公知の緑色蛍光性の C-545 T をドーブした発光層が EL 媒体に含まれる有機系 EL 素子の製造を説明するものである。当該有機系 EL 媒体は三つの有機層、すなわち、正孔輸送層と、ドーブされた発光層と、電子輸送層とを有する。

(a) インジウム錫酸化物 (ITO) を被覆したガラス基板を、順に、市販の洗剤で超音波処理し、脱イオン水でリンスし、トルエン蒸気で脱脂処理し、そして酸素プラズマに晒した後、CF₄ プラズマ処理を施した。

(b) 処置後の ITO ガラス基板の上に、タンタルポートからの蒸発法により N, N'-ビス-(1-ナフチル)-N, N'-ジフェニルベンジジンの正孔輸送層 (600 Å) を付着させた。

(c) 次に、正孔輸送層の上にドーブされた Alq 層 (375 Å) を付着させた。このドーブされた層は、1 モル%の緑色蛍光性 C-545 T を含有し、Alq と同時付着させて均一なドーブされた発光層を形成したものである。

(d) 次に、発光層の上に Alq の電子輸送層 (350 Å) を付着させた。

(e) Alq 層の上に、原子比 10:1 の Mg と Ag からなるカソード層 (2000 Å) を付着させた。

【0075】上記の順序で EL 素子の蒸着を完了した。その後、EL 素子を周囲環境から保護するためにドライグローブボックスの中で気密包装した。本 EL 素子は、20 mA/cm² の電源及び 6.8 ボルトのバイアス電圧で駆動した時に 1748 cd/m² の光出力を示した。EL 色は緑色で、その 1931 CIE 色度座標は x=0.325, y=0.627 であった。放射輝度は 3.38 W/Sr/m² で、EL 効率は 4.05 lm/W で、そして収量は 8.74 cd/A であった。EL スペクトルのピーク発光波長は 524 nm で、その半値幅は 68 nm であった。この EL スペクトルは、当該 EL 発光が、緑色蛍光色素をドーブした Alq 層から生じたことを示唆するものである。

【0076】例 11

本例は、新規な緑色蛍光性のC-545TBをドーブした発光層がEL媒体に含まれる有機系EL素子を製造する利点を説明するものである。当該有機系EL媒体は三つの有機層、すなわち、正孔輸送層と、ドーブされた発光層と、電子輸送層とを有する。

(a) インジウム錫酸化物(ITO)を被覆したガラス基板を、順に、市販の洗剤で超音波処理し、脱イオン水でリンスし、トルエン蒸気で脱脂処理し、そして酸素プラズマに晒した後、CF₄プラズマ処理を施した。

(b) 処置後のITOガラス基板の上に、タンタルポートからの蒸発法によりN, N'-ビス-(1-ナフチル)-N, N'-ジフェニルベンジジンの正孔輸送層(600Å)を付着させた。

(c) 次に、正孔輸送層の上にドーブされたAlq層(375Å)を付着させた。このドーブされた層は、1モル%の緑色蛍光性C-545TBを含有し、Alqと同時に付着させて均一なドーブされた発光層を形成したものである。

(d) 次に、発光層の上にAlqの電子輸送層(350Å)を付着させた。

(e) Alq層の上に、原子比10:1のMgとAgからなるカソード層(2000Å)を付着させた。

【0077】上記の順序でEL素子の蒸着を完了した。その後、EL素子を周囲環境から保護するためにドライグローブボックスの中で気密包装した。本EL素子は、20mA/cm²の電源及び6.9ボルトのバイアス電圧で駆動した時に2014cd/m²の光出力を示した。EL色は緑色で、その1931CIE色度座標はx=0.322, y=0.629であった。放射輝度は3.89W/Sr/m²で、EL効率は4.62lm/Wで、そして収量は10.07cd/Aであった。ELスペクトルのピーク発光波長は524nmで、その半値幅は64nmであった。このELスペクトルは、当該EL発光が、緑色蛍光色素をドーブしたAlq層から生じたことを示唆するものである。

【0078】例12

本例は、公知の緑色蛍光性のC-545Tをドーブした発光層がEL媒体に含まれる有機系EL素子を製造する利点を説明するものである。当該有機系EL媒体は四つの有機層、すなわち、正孔注入層と、正孔輸送層と、ドーブされた発光層と、電子輸送層とを有する。

(a) インジウム錫酸化物(ITO)を被覆したガラス基板を、順に、市販の洗剤で超音波処理し、脱イオン水でリンスし、トルエン蒸気で脱脂処理し、そして紫外線及びオゾンに2~3分間晒した。

(b) ITO被覆基板の上に、タンタルポートからの蒸発法により銅フタロシアニンの正孔注入層(150Å)を付着させた。

(c) 銅フタロシアニン層の上に、タンタルポートからの蒸発法によりN, N'-ビス-(1-ナフチル)-

N, N'-ジフェニルベンジジンの正孔輸送層(600Å)を付着させた。

(d) 次に、正孔輸送層の上にドーブされたAlq層(375Å)を付着させた。このドーブされた層は、1モル%の緑色蛍光性C-545Tを含有し、Alqと同時に付着させて均一なドーブされた発光層を形成したものである。

(e) 次に、発光層の上にAlqの電子輸送層(350Å)を付着させた。

(f) Alq層の上に、原子比10:1のMgとAgからなるカソード層(2000Å)を付着させた。

【0079】上記の順序でEL素子の蒸着を完了した。その後、EL素子を周囲環境から保護するためにドライグローブボックスの中で気密包装した。本EL素子は、20mA/cm²の電源及び11.1ボルトのバイアス電圧で駆動した時に2364cd/m²の光出力を示した。EL色は緑色で、その1931CIE色度座標はx=0.295, y=0.648であった。EL効率は3.34lm/Wで、そして収量は10.45cd/Aであった。ELスペクトルのピーク発光波長は524nmで、その半値幅は56nmであった。このELスペクトルは、当該EL発光が、緑色蛍光色素をドーブしたAlq層から生じたことを示唆するものである。

【0080】例13

本例は、新規な緑色蛍光性のC-545TBをドーブした発光層がEL媒体に含まれる有機系EL素子を製造する利点を説明するものである。当該有機系EL媒体は四つの有機層、すなわち、正孔注入層と、正孔輸送層と、ドーブされた発光層と、電子輸送層とを有する。

(a) インジウム錫酸化物(ITO)を被覆したガラス基板を、順に、市販の洗剤で超音波処理し、脱イオン水でリンスし、トルエン蒸気で脱脂処理し、そして紫外線及びオゾンに2~3分間晒した。

(b) ITO被覆基板の上に、タンタルポートからの蒸発法により銅フタロシアニンの正孔注入層(150Å)を付着させた。

(c) 銅フタロシアニン層の上に、タンタルポートからの蒸発法によりN, N'-ビス-(1-ナフチル)-N, N'-ジフェニルベンジジンの正孔輸送層(600Å)を付着させた。

(d) 次に、正孔輸送層の上にドーブされたAlq層(375Å)を付着させた。このドーブされた層は、1モル%の緑色蛍光性C-545TBを含有し、Alqと同時に付着させて均一なドーブされた発光層を形成したものである。

(e) 次に、発光層の上にAlqの電子輸送層(350Å)を付着させた。

(f) Alq層の上に、原子比10:1のMgとAgからなるカソード層(2000Å)を付着させた。

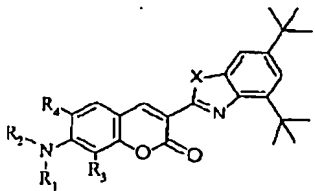
【0081】上記の順序でEL素子の蒸着を完了した。

その後、EL素子を周囲環境から保護するためにドライグローブボックスの中で気密包装した。本EL素子は、 20 mA/cm^2 の電源及び11.5ボルトのバイアス電圧で駆動した時に 2585 cd/m^2 の光出力を示した。EL色は緑色で、その1931CIE色度座標は $x=0.302$, $y=0.644$ であった。放射輝度は 5.0 W/Sr/m^2 で、EL効率は 3.501 lm/W で、そして収量は 12.93 cd/A であった。ELスペクトルのピーク発光波長は 524 nm で、その半値幅は 56 nm であった。このELスペクトルは、当該EL発光が、緑色蛍光色素をドーブしたAlq層から生じたことを示唆するものである。

【0082】本発明によるEL素子構造は、極めて有利であり且つ意外な結果をもたらすことがわかった。特にそのような有機系EL素子は、アノードと、カソードと、そして下式の化合物を含有する少なくとも一つの有機発光層とを含む。

【0083】

【化19】



【0084】上式中、XはS又はOを表し、 R_1 及び R_2 は、各々独立に、炭素原子数1~20のアルキル基、アリール基又は炭素環式系を表し、そして R_3 及び R_4 は、各々独立に、炭素原子数1~10のアルキル基又はそれぞれ R_1 、 R_2 と結合している分岐したもしくは分岐していない5員もしくは6員の置換基環を表す。より具体的には、 R_1 、 R_2 、 R_3 及び R_4 は、メチル、エチル、プロピル、 n -ブチル、 i -プロピル又はアリールであることができる。また、 R_3 及び R_4 をそれぞれ R_1 及び R_2 と共に、 R_1 、 R_2 = R_3 、 R_4 が $[\text{CH}_2, \text{CH}_2]$ 、 $[\text{CH}_2, \text{CH}_2, \text{CH}_2]$ 、 $[\text{CH}_2, \text{CH}_2, \text{C}(\text{CH}_3)_2]$ となるように配置することもできる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の化合物を使用することができる好適な

EL素子の多層構造の概略図である。

【図2】本発明の化合物を使用することができる別の好適なEL素子の多層構造の概略図である。

【図3】本発明の化合物を使用することができる別の好適なEL素子の多層構造の概略図である。

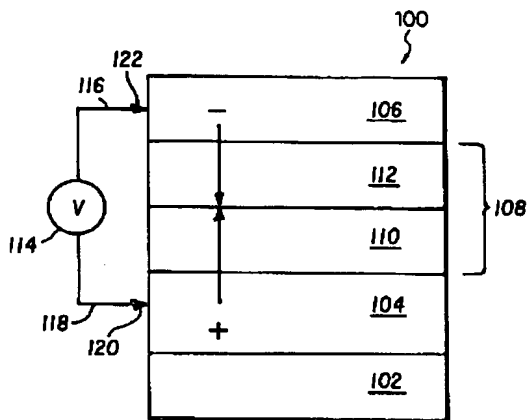
【図4】本発明による化合物C-545TBを緑色ドーパントとして使用したEL素子の分光特性及びEL性能をプロットしたグラフである。

【符号の説明】

- 100...EL素子
- 102...支持体層
- 104...アノード
- 106...カソード
- 108...有機系EL媒体
- 110...正孔輸送層
- 112...電子輸送層
- 114...外部電源
- 116...導線
- 118...導線
- 20120...正孔
- 122...電子
- 200...EL素子
- 202...支持体層
- 204...アノード
- 206...カソード
- 208...有機系EL媒体
- 210...正孔輸送層
- 212...発光層
- 214...電子輸送層
- 300...EL素子
- 302...支持体層
- 304...アノード
- 306...カソード
- 308...有機系EL媒体
- 310...正孔注入層
- 312...正孔輸送層
- 314...発光層
- 316...電子輸送層
- 318...電子注入層

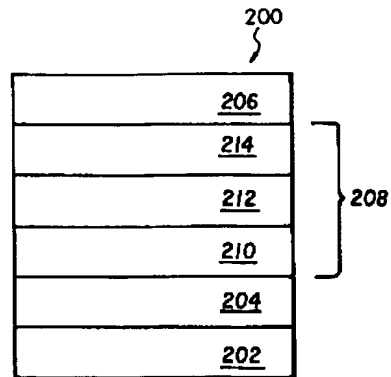
【図 1】

図 1



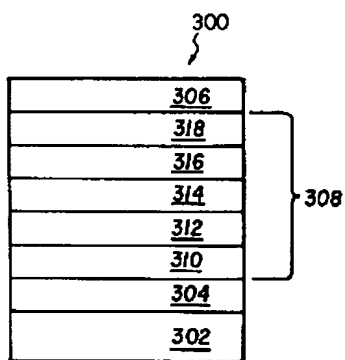
【図 2】

図 2

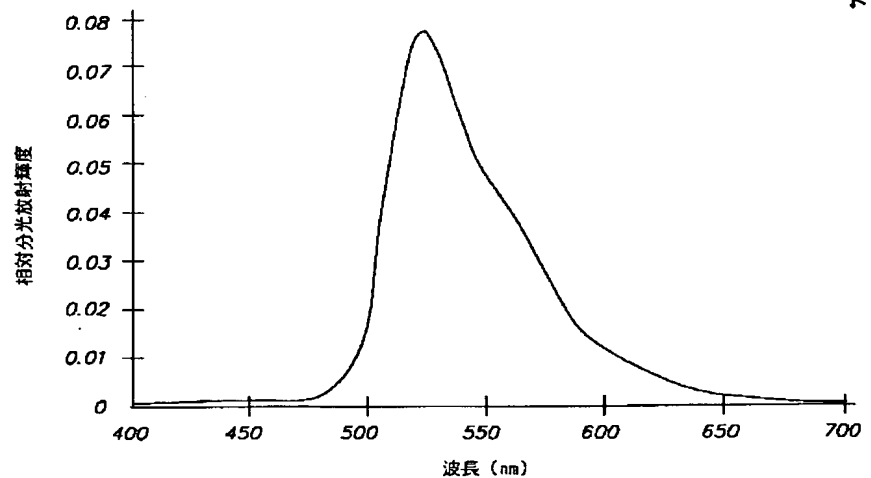


【図 3】

図 3



【図 4】



フロントページの続き

(72)発明者 チャンミン シ
アメリカ合衆国, ニューヨーク 14580,
ウェブスター, グロウス ポイント 34

(72)発明者 ケビン ピー. クルベク
アメリカ合衆国, ニューヨーク 14612,
ロチェスター, デュウェイ アベニュー
4698

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.